

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-340361

(43)Date of publication of application : 08.12.2000

(51)Int.Cl. H05B 33/14

H05B 33/10

H05B 33/22

(21)Application number : 11-144497 (71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 25.05.1999 (72)Inventor : FUKUYAMA MASAO

SUZUKI MUTSUMI

KUDO YUJI

HORI YOSHIKAZU

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To have high luminous efficiency and emit lights of various colors by setting the film thickness of a light emission layer including an organic substance causing concentration quenching to a specific value or less.

SOLUTION: It is preferable that the film thickness of a light emitting layer of an organic electroluminescence element is set to 4 nm or less. Among light emitting materials used here and causing concentration quenching are quinacridone derivative, cumarin derivative, melocyanine derivative, oxazole derivative, thiazole derivative, styryl derivative, flavone derivative, and

condensation polycyclic compound. The organic electroluminescence element is prepared by vapor depositing a hole transport layer 3 for transporting a positive hole, a light emitting layer 4 inducing light emission phenomena, an electron transport layer 5 for transporting electrons, and a negative electrode on a material defining an ITO electrode beforehand as a transference electrode 2 on a glass substrate 1 in this order. DCM (4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p- dimethylaminostyry)-4H-pyran), or an organic substance causing concentration quenching expressed by a formula is used for the light emitting layer 4.

LEGAL STATUS [Date of request for examination] 25.10.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 28.03.2006

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3885412

[Date of registration] 01.12.2006

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 2006-008374

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection] 27.04.2006

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any

damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] Organic electroluminescence devices which are the organic electroluminescence devices which have a luminous layer at least between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and are characterized by the thickness of said luminous layer being 4nm or less including the predetermined organic substance with which said luminous layer starts concentration quenching.

[Claim 2] Organic electroluminescence devices characterized by being the organic electroluminescence devices which have at least the luminous layer which contains the predetermined organic substance between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and the charge transportation layer which conveys an electron or an electron hole, and being shorter than the life time of

fluorescence of the predetermined ingredient with which the life time of fluorescence of said organic substance is included in said charge transportation layer, and the thickness of said luminous layer being 4nm or less.

[Claim 3] Organic electroluminescence devices characterized by being the organic electroluminescence devices which have at least the luminous layer which contains the predetermined organic substance between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and for the life time of fluorescence of said organic substance being less than [10n second], and the thickness of said luminous layer being 4nm or less.

[Claim 4] Organic electroluminescence devices which are the organic electroluminescence devices which have a luminous layer at least between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and are characterized by forming said luminous layer at island shape including the predetermined organic substance with which said luminous layer starts concentration quenching.

[Claim 5] Organic electroluminescence devices characterized by being the organic electroluminescence devices which have at least the charge transportation layer which conveys the luminous layer containing the predetermined organic substance, and an electron or an electron hole between

the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and being shorter than the life time of fluorescence of the ingredient with which the life time of fluorescence of said organic substance is included in said charge transportation layer, and forming said luminous layer in island shape.

[Claim 6] Organic electroluminescence devices which it is the organic electroluminescence devices which have at least the luminous layer which contains the predetermined organic substance between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and the life time of fluorescence of said organic substance is less than [10n second], and are characterized by forming said luminous layer in island shape.

[Claim 7] Organic electroluminescence devices according to claim 1, 3, 4, or 6 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer between said electron hole transportation layers and said electron transport layers.

[Claim 8] Organic electroluminescence devices according to claim 2 or 5 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron with which a charge transportation layer

conveys an electron hole, and having prepared the luminous layer between said electron hole transportation layers and said electron transport layers.

[Claim 9] Organic electroluminescence devices according to claim 1, 3, 4, or 6 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron hole transportation layer.

[Claim 10] Organic electroluminescence devices according to claim 2 or 5 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron with which a charge transportation layer conveys an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron hole transportation layer.

[Claim 11] Organic electroluminescence devices according to claim 1, 3, 4, or 6 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron transport layer.

[Claim 12] Organic electroluminescence devices according to claim 2 or 5 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron with which a charge transportation layer

conveys an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron transport layer.

[Claim 13] Organic electroluminescence devices according to claim 1, 3, 4, or 6 characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer in the part of either plurality in said electron hole transportation layer or said electron transport layer between said electron hole transportation layers and electron transport layers.

[Claim 14] Organic electroluminescence devices according to claim 2 or 5 to which it has the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron with which a charge transportation layer conveys an electron hole, and a luminous layer is characterized by having prepared in the part of either plurality in said electron hole transportation layer or said electron transport layer between said electron hole transportation layers and electron transport layers.

[Claim 15] 14 is [claim 1 characterized by preparing an electron hole block layer in contact with a luminous layer thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 16] 14 is [claim 1 characterized by preparing an electronic block layer in contact with a luminous layer thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 17] 14 is [claim 7 characterized by preparing the mixolimnion of the 1st ingredient contained in an electron hole transportation layer in contact with a luminous layer, and the 2nd ingredient contained in a luminous layer thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 18] 4 is [claim 7 characterized by preparing the mixolimnion of the 1st ingredient contained in an electron transport layer in contact with a luminous layer, and the 2nd ingredient contained in a luminous layer thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 19] 18 is [claim 1 characterized by the luminous layer having multilayer structure thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 20] 18 is [claim 1 characterized by emitting light in the white light thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either by establishing the multilayer structure which consists of two or more luminous layers which emit light in a color different, respectively.

[Claim 21] 18 is [claim 1 characterized by the luminous layer being a letter of a

block thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

[Claim 22] Organic electroluminescence devices according to claim 21

characterized by becoming white luminescence by preparing the luminous layer of the letter of a block which consists of a field which emits light in two or more colors.

[Claim 23] 22 is [claim 1 characterized by forming a luminous layer of vapor growth thru/or] the organic electroluminescence devices of a publication either.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention is a light emitting device broadly used as various kinds of displays, such as a display, and relates to the organic electroluminescence devices which were especially excellent in low driver voltage, high brightness, and stability.

[0002]

[Description of the Prior Art] Electroluminescence devices are bright compared with a liquid crystal device because of self-luminescence, and since the clear display is possible, they have been studied by the researcher of the former many.

[0003] There is a component using ZnS of an inorganic material as electroluminescence devices currently attained and commercialized by current and practical use level.

[0004] However, since such inorganic electroluminescence devices are about

[200V] need as driver voltage for luminescence, they have come to be used widely.

[0005] On the other hand, although the organic electroluminescence devices which are the electroluminescence devices using an organic material were far from practical level conventionally, the property progressed by leaps and bounds by the laminating constituent child developed by C.W.Tang and others of KODAKKU as indicated in applied physics Letters, 51 volumes, 913 pages, and 1987 (Applied Physics Letters, Vol.51, P.913, 1987).

[0006] The structure of the vacuum evaporation film carried out the laminating of the fluorescent substance which is stable and can convey an electron, and the organic substance which can convey an electron hole, and they succeeded in pouring in both carriers into a fluorescent substance and making them emit light.

[0007] The luminous efficiency of organic electroluminescence devices improves and two or more 1000 cd/m luminescence came to be obtained on the electrical potential difference not more than 10V by this.

[0008] Furthermore, similarly the luminous layer by the guest host system was proposed by C.W.Tang and others of KODAKKU, and 1989 came usable [the improvement in the luminous efficiency of a component, and various

luminescent material] as indicated in journal OBU applied physics, 65 volumes, 3610 pages, and 1989 (3610 65 J. Appl.Phys., Vol. P. 1989). Many of organic electroluminescence devices with high current and luminous efficiency use the luminous layer by the guest host system.

[0009] However, in order to obtain the component whose luminous efficiency improved with the guest host system, it is necessary to dope the luminescent material which is a guest ingredient into a host ingredient by about [1mol%] low concentration. In organic electroluminescence devices, the thickness of a luminous layer is about dozens of nm, and the formation approach usually uses the vacuum deposition method. For this reason, it is difficult to form in homogeneity the thin film luminous layer [DOPI / luminous layer / such low concentration] at the substrate of a large area, and has been a big problem in utilization of the component by the guest host system.

[0010] Moreover, even if it uses the luminescent material used as a guest ingredient as a luminous layer by the usual approach, it is difficult to obtain organic electroluminescence devices with sufficient luminous efficiency.

[0011]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Luminous efficiency is high and this

invention aims at offering easily the organic electroluminescence devices which can emit light for various colors.

[0012]

[Means for Solving the Problem] This invention is the organic electroluminescence devices by which the organic substance used for a luminous layer starts concentration quenching, and the thickness of a luminous layer was formed in 4nm or less or island shape. Or the life time of fluorescence of the organic substance used for a luminous layer is shorter than the life time of fluorescence of an electron and other ingredients used for the recombination field of an electron hole, and they are the organic electroluminescence devices by which the thickness of a luminous layer was formed in 4nm or less or island shape. Or the life time of fluorescence of the organic substance used for a luminous layer is 10 or less nanoseconds, and they are the organic electroluminescence devices by which the thickness of a luminous layer was formed in 4nm or less or island shape.

[0013] According to such a configuration, luminous efficiency is high and the organic electroluminescence devices which can emit light for various colors are offered easily.

[0014]

[Embodiment of the Invention] Invention according to claim 1 is organic electroluminescence devices which are the organic electroluminescence devices which have a luminous layer at least between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and are characterized by the thickness of said luminous layer being 4nm or less including the organic substance with which said luminous layer starts concentration quenching. Although concentration quenching is the phenomenon in which it will not shine if concentration is raised, even if it uses for a luminous layer the organic substance which starts concentration quenching in this way, efficient electroluminescence becomes possible by setting thickness of a luminous layer to 4nm or less. As a luminescent material which starts concentration quenching used here, it can choose out of various kinds of fluorescence organic compounds, such as laser coloring matter, and the Quinacridone derivative, a coumarin derivative, a merocyanine derivative, an oxazole derivative, a thiazole derivative, a styryl derivative, a flavone derivative, a quinoline derivative, an acridine derivative, a condensed multi-ring compound, etc. are especially mentioned as a useful luminescent material. Specifically, - dimethyl Quinacridone (it is called Following

DMQ), and N,N,N'-diphenyl Quinacridone, a 3-(2'-benzothiazolyl)-7-diethylamino coumarin (henceforth a coumarin 6), a 4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (it is called Following DCM), rubrene, diphenyl tetracene, perylene, etc. are mentioned. [N, and]

[0015] It is the organic electroluminescence devices which have at least the charge transportation layer which conveys the luminous layer containing the organic substance, and an electron or an electron hole between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and invention according to claim 2 is shorter than the life time of fluorescence of the ingredient with which the life time of fluorescence of said organic substance is included in said charge transportation layer, and is organic electroluminescence devices characterized by the thickness of said luminous layer being 4nm or less. By preparing such a luminous layer, the energy of the exciton which an electron and an electron hole recombine and generate in a charge transportation layer can be efficiently moved to the ingredient of a luminous layer, and it becomes possible to obtain efficient electroluminescence from a luminous layer. The life time of fluorescence here shows time amount until fluorescence intensity is set to early

1/e, and it is measured by the general-purpose life-time-of-fluorescence measuring device. As an example of such a component, the example using tris (eight quinolinol) aluminum (it is called Following Alq) as an ingredient used for a charge transportation layer can be given, for example, using a 4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (it being called Following DCM) as the organic substance used for a luminous layer. The life time of fluorescence of DCM is 2-3n second, and the life time of fluorescence of Alq is about 12n second. In addition, it cannot be overemphasized that, as for the phenomenon which an electron and an electron hole recombine and generates an exciton, a luminous layer may also happen.

[0016] Invention according to claim 3 is organic electroluminescence devices characterized by being the organic electroluminescence devices which have at least the luminous layer which contains the organic substance between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and for the life time of fluorescence of said organic substance being less than [10n second], and the thickness of said luminous layer being 4nm or less. Thus, the energy of the exciton which generated the life time of fluorescence of the organic substance used for a luminous layer by the recombination of an electron and an electron

hole by using the following [10n second] can be efficiently moved to a luminous layer, and electroluminescence efficient also as that [4nm] can be obtained for the thickness of a luminous layer. As the organic substance not more than 10n second, DCM is mentioned for the life time of fluorescence, for example. The life time of fluorescence of DCM is 2-3n second.

[0017] Invention according to claim 4 is organic electroluminescence devices which are the organic electroluminescence devices which have a luminous layer at least between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and are characterized by forming said luminous layer at island shape including the organic substance with which said luminous layer starts concentration quenching. Thus, even if it uses for a luminous layer the organic substance which starts concentration quenching, efficient electroluminescence becomes possible by forming a luminous layer in island shape. As a luminescent material which starts concentration quenching used here, it can be chosen out of various kinds of fluorescence organic compounds, such as laser coloring matter, and the Quinacridone derivative, a coumarin derivative, a merocyanine derivative, an oxazole derivative, a thiazole derivative, a styryl derivative, a flavone derivative, a quinoline derivative, an acridine derivative, a condensed multi-ring compound,

etc. are especially mentioned as a useful luminescent material. Specifically, - dimethyl Quinacridone (DMQ), and N,N, N'-diphenyl Quinacridone, a 3-(2'-benzothiazolyl)-7-diethylamino coumarin (coumarin 6), a 4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (DCM), rubrene, diphenyl tetracene, perylene, etc. are mentioned. [N, and] When carrying out thin film formation generally and the ultra-thin film, for example, a thin film 1nm or less, is created, the film is formed in island shape in many cases. [0018] It is the organic electroluminescence devices which have at least the charge transportation layer which conveys the luminous layer containing the organic substance, and an electron or an electron hole between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and invention according to claim 5 is shorter than the life time of fluorescence of the ingredient with which the life time of fluorescence of said organic substance is included in said charge transportation layer, and is organic electroluminescence devices characterized by forming said luminous layer in island shape. By preparing such a luminous layer, the energy in a charge transportation layer is efficiently movable to the ingredient of a luminous layer, and even if it forms a luminous layer in island shape, it becomes possible to obtain efficient electroluminescence from a

luminous layer. The life time of fluorescence here shows time amount until fluorescence intensity is set to early $1/e$, and it is measured by the general-purpose life-time-of-fluorescence measuring device. When carrying out thin film formation generally and the ultra-thin film, for example, a thin film 1nm or less, is created, the film is formed in island shape in many cases. In addition, it cannot be overemphasized that, as for the phenomenon which an electron and an electron hole recombine and generates an exciton, a luminous layer may also happen.

[0019] It is the organic electroluminescence devices which have at least the luminous layer which contains the organic substance between the electrode of a pair, and the electrode of said pair, and the life time of fluorescence of said organic substance is less than [10n second], and invention according to claim 6 is organic electroluminescence devices characterized by forming said luminous layer in island shape. Thus, the energy of the exciton which generated the life time of fluorescence of the organic substance used for a luminous layer by the recombination of an electron and an electron hole by using the following [10n second] is efficiently movable to a luminous layer, and efficient electroluminescence can be obtained even if it forms a luminous layer in island

shape. When carrying out thin film formation generally and the ultra-thin film, for example, a thin film 1nm or less, is created, the film is formed in island shape in many cases.

[0020] Invention according to claim 7 or 8 is organic electroluminescence devices characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer between said electron hole transportation layers and said electron transport layers. Thus, by preparing a luminous layer between an electron hole transportation layer and an electron transport layer, the balance of the electron hole and electron which are poured in to a luminous layer becomes good, and improvement in luminous efficiency is made.

[0021] Invention according to claim 9 or 10 is organic electroluminescence devices characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron hole transportation layer. By taking such a configuration, the energy of the exciton considered to exist mostly near the interface of an electron hole transportation layer and an

electron transport layer is efficiently movable to a luminous layer, and even if it prepares a luminous layer into an electron hole transportation layer, efficient luminescence is attained. The location in which a luminous layer is prepared has a good direction near the interface of an electron hole transportation layer and an electron transport layer.

[0022] Invention according to claim 11 or 12 is organic electroluminescence devices characterized by having the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and having prepared the luminous layer into said electron transport layer. By taking such a configuration, the energy of the exciton considered to exist mostly near the interface of an electron hole transportation layer and an electron transport layer is efficiently movable to a luminous layer, and even if it prepares a luminous layer into an electron transport layer, efficient luminescence is attained. Although the location in which a luminous layer is prepared has a good direction near the interface of an electron hole transportation layer and an electron transport layer, when preparing into an electron transport layer, even if it detaches about 20nm unlike the case where it prepares into an electron hole transportation layer, luminescence is enough obtained from a luminous layer.

[0023] Invention according to claim 13 or 14 has the electron transport layer which conveys the electron hole transportation layer and electron which convey an electron hole, and they are the organic electroluminescence devices to which a luminous layer is characterized by having prepared in the part of either plurality in said electron hole transportation layer or said electron transport layer between said electron hole transportation layers and electron transport layers. Thus, improvement in cause luminous efficiency is made still more efficiently [the energy transfer from an exciton to a luminous layer] by preparing in two or more parts.

[0024] Invention according to claim 15 is organic electroluminescence devices characterized by preparing an electron hole block layer in contact with a luminous layer, it can limit an electron hole and an electronic recombination field near the luminous layer, and improvement in luminous efficiency of it is attained. It is used by organic electroluminescence devices from the former, and the super-thin film of inorganic compounds, such as organic compounds, such as a triazole derivative and a metal complex of an eight-quinolinol derivative, an alkali metal compound, an alkaline-earth-metal compound, and oxidation aluminum, is easy to be mentioned as an electron hole block layer used here. Specifically, it is

3-(4-biphenyl)-4-FENIRIRU-5-TASHARUBUCHIRUFENIRIRU. - 1, 2, 4-triazole, tris (eight quinolinol) aluminum, LiF, Li₂O, MgF, CaF, SiO, GeO, etc. are mentioned.

[0025] Invention according to claim 16 is organic electroluminescence devices characterized by preparing an electronic block layer in contact with a luminous layer, it can limit an electron hole and an electronic recombination field near the luminous layer, and improvement in luminous efficiency of it is attained. It is used by organic electroluminescence devices from the former, and the super-thin film of inorganic compounds, such as organic compounds, such as an aromatic amine compound, an alkali metal compound, an alkaline-earth-metal compound, and an oxide, a fluoride, is easy to be mentioned as an electronic block layer used here. Specifically, LiF, Li₂O, MgF, CaF, SiO, GeO, etc. are mentioned.

[0026] Invention according to claim 17 is organic electroluminescence devices characterized by preparing the mixolimnion of the 1st ingredient contained in an electron hole transportation layer in contact with a luminous layer, and the 2nd ingredient contained in a luminous layer. Thus, by preparing the mixolimnion of an electron hole transportation ingredient and luminescent material, the condition of the interface of luminescence material can be stabilized and it

becomes possible to raise the luminescence stability at the time of a drive especially.

[0027] Invention according to claim 18 is organic electroluminescence devices characterized by preparing the mixolimnion of the 1st ingredient contained in an electron transport layer in contact with a luminous layer, and the 2nd ingredient contained in a luminous layer. Thus, by preparing the mixolimnion of an electronic transportation ingredient and luminescent material, the condition of the interface of luminescence material can be stabilized and it becomes possible to raise the luminescence stability at the time of a drive especially.

[0028] Invention according to claim 19 is the organic electroluminescence devices characterized by the luminous layer having multilayer structure, and improvement in luminous efficiency of it is attained according to increase of a luminescence field. It is possible to make a color which is different in a luminous layer, respectively into the multilayer structure which consists of two or more luminous layers which emit light furthermore, two or more luminescent color can be mixed by this, and various luminescent color can be realized.

[0029] By establishing the multilayer structure which consists of two or more luminous layers which emit light in a color different, respectively, invention

according to claim 20 is the organic electric-field light corpuscle child characterized by becoming white luminescence, and efficient white luminescence of it is attained. Various approaches, such as making the three primary colors of blue, green, and red emit light, and also using the color mixture of bluish green color system luminescence and orange system luminescence as the formation approach of white luminescence, are possible.

[0030] Invention according to claim 21 is the organic electroluminescence devices characterized by the luminous layer being a letter of a block, and its stability of luminescence improves by division of a luminescence field. Furthermore, two or more block fields which emit [luminous layer] light in two or more colors can be prepared, and various luminescent color can be realized by mixing two or more luminescent color.

[0031] By preparing the luminous layer of the letter of a block which consists of a field which emits light in two or more colors, invention according to claim 22 is the organic electroluminescence devices characterized by becoming white luminescence, and efficient white luminescence of it is attained. The various approaches of making the three primary colors of blue, green, and red emit light, and also being bluish green color system luminescence and orange system

luminescence as the formation approach of white luminescence, such as carrying out color mixture, are possible. Moreover, formation of a luminous layer 4nm or less and formation of an island-shape luminous layer can be easily performed like by [according to claim 23] forming a luminous layer by vapor growth. As vapor growth, a vacuum deposition method is the optimal.

[0032] this invention is looked like [below] according to the gestalt of concrete operation, and is explained to it.

[0033] N and N' which are shown by (** 1) as electron hole transportation material with the gestalt of the following operations - screw [4'-(N and N'-diphenylamino)-4-biphenyl]-N and N' - diphenyl benzidine (it being called Following TPT) Tris (eight quinolinol) aluminum shown by (** 2) as electronic transportation material (it is called Following Alq.) Although it uses and the configuration of a component which carried out the laminating to the order of an anode plate, an electron hole transportation layer, a luminous layer, an electron transport layer, and cathode is shown typically, of course, there is no this invention what is limited to this configuration. Moreover, although a laminating is usually carried out to the order of cathode from an anode plate on a substrate, contrary to this, a laminating may be carried out to the order of an anode plate

from cathode on a substrate.

[0034]

[Formula 1]

[0035]

[Formula 2]

[0036] (Gestalt 1 of operation) Although the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 1st of this invention formed the ITO electrode beforehand as a transparent electrode 2 on the glass substrate 1 as the sectional view was shown in drawing 1 , they have the electron hole transportation layer 3 which conveys an electron hole upwards, the luminous

layer 4 to which luminescence happens, the electron transport layer 5 which conveys an electron, and the configuration which vapor-deposited in order of cathode 6, and was produced. DCM shown in (** 3) as a luminous layer was used. DCM is the organic substance which starts concentration quenching.

[0037]

[Formula

3]

[0038] First, a glass substrate, TPT, DCM and Alq, aluminum, and a lithium with the fully washed ITO electrode were set in vacuum evaporation equipment.

[0039] Subsequently, after exhausting to 2×10^{-6} torr, TPT set by 0.1nm/second in rate was vapor-deposited, and 50nm of electron hole transportation layers was formed. Subsequently, DCM of the set luminescence material was vapor-deposited by 0.01nm/second in rate, and the luminous layer of 0.2nm of thickness was formed. Next, Alq of electronic transportation material was vapor-deposited in a second in 0.1nm /, and the laminating of the electron transport layer of 50nm of thickness was carried out. Then, aluminum and a

lithium were vapor-deposited from the respectively different source of vacuum evaporation, 150nm of vapor codeposition layers of aluminum and a lithium was formed, and it considered as cathode. In addition, each of these vacuum evaporation was performed continuously, without breaking a vacuum, and it acted as the monitor of the thickness with the quartz resonator.

[0040] And after component production, ejection of an electrode was immediately performed in desiccation nitrogen, and property measurement was performed succeedingly. Here, the value in luminescence brightness 100 cd/m² defined the luminous efficiency of the obtained component. Moreover, when initial brightness was driven with a fixed current as 1000 cd/m², while brightness became 500 cd/m² of early one half, time amount defined the drive life.

[0041] The thickness of a luminous layer was changed and same measurement was performed. The result is shown in the following (table 1).

[0042]

[Table

1]

[0043] From (Table 1), it was checked that the organic electroluminescence devices of the gestalt of this operation are excellent in luminous efficiency and a drive life.

[0044] In addition, the life time of fluorescence of DCM is 2-3n second, and the life time of fluorescence of Alq is about 12n second. Moreover, when thickness is 1nm or less, possibility of a thin film of being formed in island shape is high, and it is understood that the good result is obtained also in that case from (Table 1).

[0045] (Gestalt 2 of operation) Except having prepared the luminous layer into the electron transport layer or the electron hole transportation layer, as the sectional view was shown in drawing 2 and drawing 3 , the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 2nd of this invention produced organic electroluminescence devices like the gestalt 1 of operation, and evaluated the property. In drawing 2 and drawing 3 , the electron

hole transportation layer to which a glass substrate and 2 convey a transparent electrode, and, as for 3, 1 conveys an electron hole, the luminous layer to which, as for 4, luminescence happens, the electron transport layer to which 5 conveys an electron, and 6 are cathode. Although the detail of the location of a luminous layer is as having been shown in (Table 2), as it was indicated in drawing 2 and drawing 3 as X and Y of front Naka, it shows which the luminous layer has separated from the interface of an electron transport layer and an electron hole transportation layer, and is.

[0046] The result is shown in the following (table 2).

[0047]

[Table 2]

[0048] From (Table 2), it was checked that the organic electroluminescence

devices of the gestalt of this operation are excellent in luminous efficiency and a drive life. It was checked that it is effective not only between an electron hole transportation layer and electron transport layers but to prepare into an electron hole transportation layer and an electron transport layer as a location in which a luminous layer is prepared. However, after separating 2nm from the interface of an electron hole transportation layer and an electron transport layer, it became green luminescence from Alq which is an electron transport layer, and luminescence from DCM was not obtained at the ** case which prepares a luminous layer into an electron hole transportation layer. On the other hand, in the case where it prepares into an electron transport layer, even if prepared in the place which separated 20nm from the interface, it was checked that luminescence of the orange from DCM is obtained. Furthermore, it was checked by preparing a luminous layer in two or more parts that luminous efficiency and a drive life had improved.

[0049] (Gestalt 3 of operation) Except having prepared the electron hole block layer or the electronic block layer in contact with the luminous layer, as the sectional view was shown in drawing 4 , the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 3rd of this invention produced organic

electroluminescence devices like the gestalt 1 of operation, and evaluated the property. As for cathode and 7, in drawing 4 , the electron hole transportation layer to which a glass substrate and 2 convey a transparent electrode, and, as for 3, 1 conveys an electron hole, the luminous layer to which, as for 4, a luminous phenomenon happens, the electron transport layer to which 5 conveys an electron, and 6 are [an electronic block layer and 8] electron hole block layers. The component of a configuration of having been shown using LiF and a triazole derivative (TAZ) as an electron hole or an electronic block layer (Table 3) was produced.

[0050] The result is shown in the following (table 3).

[0051]

[Table 3]

[0052] From (Table 3), it was checked that the organic electroluminescence devices of the gestalt of this operation are excellent in luminous efficiency and a

drive

life.

[0053] (Gestalt 4 of operation) Except having prepared the mixolimnion of the electron hole transportation material contained in an electron hole transportation layer in contact with a luminous layer as the sectional view is shown in drawing 5 , and the luminescence material contained in a luminous layer, or the mixolimnion of the electronic transportation material contained in an electron transport layer, and luminescence material, the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 4th of this invention produced organic electroluminescence devices like the gestalt 1 of operation, and evaluated the property. As for cathode and 9, in drawing 5 , the electron hole transportation layer to which a glass substrate and 2 convey a transparent electrode, and, as for 3, 1 conveys an electron hole, the luminous layer to which, as for 4, luminescence happens, the electron transport layer to which 5 conveys an electron, and 6 are [the mixolimnion of electron hole transportation material and luminescence material and 10] the mixolimnions of electronic transportation material and luminescence material. In addition, the mixolimnion of electron hole transportation material (TPT) and luminescence material (DCM) was prepared between the electron hole transportation layer and the luminous layer, and the

mixolmnion of electronic transportation material (Alq) and luminescence material (DCM) was prepared between the luminous layer and the electron transport layer. Moreover, the mixolmnion formed each ingredient with vapor codeposition so that it might be set to 1:1, and the thickness could be 10nm.

[0054] The result is shown in the following (table 4).

[0055]

[Table 4]

[0056] From (Table 4), it was checked that the organic electroluminescence devices of the gestalt of this operation are excellent in luminous efficiency and a drive life.

[0057] (Gestalt 5 of operation) Except having set thickness of a luminous layer to 0.2nm using the ingredient shown for changing to a luminous layer at DCM (Table 5), the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 5th of this invention produced organic electroluminescence devices like the

gestalt 1 of operation, and evaluated the property.

[0058] The result is shown in the following (table 5).

[0059]

[Table 5]

[0060] From (Table 5), it was checked that the organic electroluminescence devices of the gestalt of this operation are excellent in luminous efficiency and a drive life.

[0061] (Gestalt 6 of operation) The organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 6th of this invention produced organic electroluminescence devices like the gestalt 1 of operation except having made the luminous layer into multilayer structure of three layers which is different in the component, as the sectional view was shown in drawing 6 and drawing 7 . In drawing 6 and drawing 7 , the electron hole transportation layer to which a glass substrate and 2 convey a transparent electrode, and, as for 3, 1 conveys an electron hole, the 1st luminous layer to which, as for 4a, luminescence happens,

the 2nd luminous layer to which, as for 4b, luminescence happens, the 3rd luminous layer to which, as for 4c, luminescence happens, the electron transport layer to which 5 conveys an electron, and 6 are cathode. Each luminous layer (4a, 4b, 4c) may prepare and form spacing like drawing 6 , and the laminating may be carried out like drawing 7 . Thus, the good result was obtained when the property of the produced component was evaluated.

[0062] Moreover, white luminescence is realizable by making a red system and 4b into a green system, and making 4c into the luminous layer of a blue system, for example for 4a. Furthermore, it is also possible to divide white luminescence into some colors again with a filter etc., and to use.

[0063] (Gestalt 7 of operation) The organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 7th of this invention produced organic electroluminescence devices like the gestalt 1 of operation except having made the luminous layer into three letters of a block from which a component differs, respectively, as the sectional view was shown in drawing 8 . In drawing 8 , the electron hole transportation layer to which a glass substrate and 2 convey a transparent electrode, and, as for 3, 1 conveys an electron hole, the 1st luminous layer to which 4d of luminescence happens, the 2nd luminous layer to

which, as for 4e, luminescence happens, the 3rd luminous layer to which 4f of luminescence happens, the electron transport layer to which 5 conveys an electron, and 6 are cathode. The letter luminous layer of a block was produced using the lithography technique, the thin film processing technique, etc. The configuration of the letter luminous layer of a block can take various gestalten, such as the shape of the shape of a stripe, or a grid. The shape of a stripe is shown in drawing 9 (a), and the example of the flat-surface block diagram of a luminous layer in the case of-like [grid] is shown in drawing 9 (b). In drawing 9 (a) and (b), they are the 1st luminous layer to which 4d of luminescence happens, the 2nd luminous layer to which, as for 4e, luminescence happens, and the 3rd luminous layer to which 4f of luminescence happens. Thus, the good result was obtained when the property of the produced component was evaluated.

[0064] In addition, white luminescence is realizable by making a red system and 4e into a green system, and making 4f into the luminous layer of a blue system for 4d in the luminous layer shown, for example by drawing 8 or drawing 9 . Furthermore, white luminescence can be again divided into some colors with a filter etc., and it can also use.

[0065]

[Effect of the Invention] As mentioned above, according to this invention, the advantageous effectiveness that organic electroluminescence devices with the small fall of the brightness at the time of a drive life with high luminous efficiency are obtained is acquired. Moreover, the organic electroluminescence devices which can emit light for various colors can be obtained easily.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 1st of this invention

[Drawing 2] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 2nd of this invention

[Drawing 3] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 2nd of this invention

[Drawing 4] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 3rd of this invention

[Drawing 5] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 4th of this invention

[Drawing 6] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 6th of this invention

[Drawing 7] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 6th of this invention

[Drawing 8] The sectional view showing the configuration of the organic electroluminescence devices in the gestalt of operation of the 7th of this invention

[Drawing 9] The flat-surface block diagram of the letter luminous layer of a block in the gestalt of operation of the 7th of this invention

[Description	of	Notations]
--------------	----	------------

1 Glass Substrate

2 Transparent Electrode

3	Electron	Hole	Transportation	Layer
---	----------	------	----------------	-------

4, 4a, 4b, 4c, 4d, 4e, 4f Luminous layer

5 Electron Transport Layer

6 Cathode

7 Electronic Block Layer

8 Electron Hole Block Layer

9 Mixolimnion of Electron Hole Transportation Material and Luminescence
Material

10 Mixolimnion of Electronic Transportation Material and Luminescence Material

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-340361

(P2000-340361A)

(43) 公開日 平成12年12月8日 (2000. 12. 8)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード* (参考)

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

A 3 K 0 0 7

33/10

33/10

33/22

33/22

A

C

審査請求 未請求 請求項の数23 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号

特願平11-144497

(22) 出願日

平成11年5月25日 (1999. 5. 25)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 福山 正雄

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号
松下技研株式会社内

(72) 発明者 鈴木 睦美

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号
松下技研株式会社内

(74) 代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

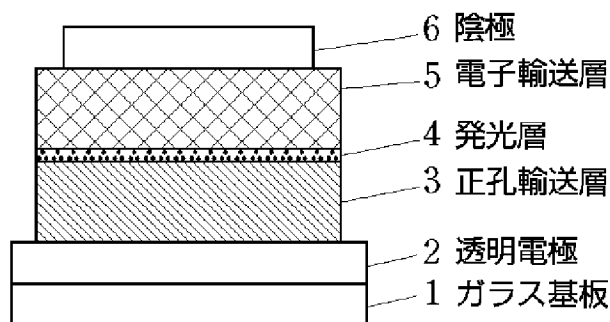
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 発光効率が高く駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明は、発光層4に用いる有機物が濃度消光を起すものであり、かつ発光層の膜厚が4nm以下、あるいは島状に形成された有機電界発光素子である。このような構成によれば、発光効率が高く、様々な色の発光が可能である有機電界発光素子が容易に提供される。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一対の電極と、前記一対の電極の間に発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記発光層が濃度消光を起す所定の有機物を含むものであり、かつ前記発光層の膜厚が 4 nm 以下であることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 2】 一対の電極と、前記一対の電極の間に所定の有機物を含有する発光層と、電子又は正孔を輸送する電荷輸送層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が前記電荷輸送層に含まれる所定の材料の蛍光寿命より短く、かつ前記発光層の膜厚が 4 nm 以下であることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 3】 一対の電極と、前記一対の電極の間に所定の有機物を含有する発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が 10 ns 以下であり、かつ前記発光層の膜厚が 4 nm 以下であることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 4】 一対の電極と、前記一対の電極の間に発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記発光層が濃度消光を起す所定の有機物を含むものであり、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 5】 一対の電極と、前記一対の電極の間に所定の有機物を含有する発光層と、電子又は正孔を輸送する電荷輸送層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が前記電荷輸送層に含まれる材料の蛍光寿命より短く、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 6】 一対の電極と、前記一対の電極の間に所定の有機物を含有する発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が 10 ns 以下であり、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子。

【請求項 7】 正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層と前記電子輸送層の間に設けてあることを特徴とする請求項 1、3、4 又は 6 記載の有機電界発光素子。

【請求項 8】 電荷輸送層が正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層と前記電子輸送層の間に設けてあることを特徴とする請求項 2 又は 5 記載の有機電界発光素子。

【請求項 9】 正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層の中に設けてあることを特徴とする請求項 1、3、4 又は 6 記載の有機電界発光素子。

【請求項 10】 電荷輸送層が正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層の中に設けてあることを特徴とする請求項 2

又は 5 記載の有機電界発光素子。

【請求項 11】 正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記電子輸送層の中に設けてあることを特徴とする請求項 1、3、4 又は 6 記載の有機電界発光素子。

【請求項 12】 電荷輸送層が正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記電子輸送層の中に設けてあることを特徴とする請求項 2 又は 5 記載の有機電界発光素子。

【請求項 13】 正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が、前記正孔輸送層と電子輸送層の間、前記正孔輸送層の中、又は前記電子輸送層の中のいずれか複数の部位に設けてあることを特徴とする請求項 1、3、4 又は 6 記載の有機電界発光素子。

【請求項 14】 電荷輸送層が正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が、前記正孔輸送層と電子輸送層の間、前記正孔輸送層の中、又は前記電子輸送層の中のいずれか複数の部位に設けてあることを特徴とする請求項 2 又は 5 記載の有機電界発光素子。

【請求項 15】 発光層に接して正孔ブロック層を設けたことを特徴とする請求項 1 ないし 14 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 16】 発光層に接して電子ブロック層を設けたことを特徴とする請求項 1 ないし 14 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 17】 発光層に接して正孔輸送層に含まれる第 1 の材料と発光層に含まれる第 2 の材料の混合層を設けたことを特徴とする請求項 7 ないし 14 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 18】 発光層に接して電子輸送層に含まれる第 1 の材料と発光層に含まれる第 2 の材料の混合層を設けたことを特徴とする請求項 7 ないし 14 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 19】 発光層が多層構造になっていることを特徴とする請求項 1 ないし 18 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 20】 それぞれ異なる色を発光する複数の発光層からなる多層構造を設けることにより白色光を発光することを特徴とする請求項 1 ないし 18 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 21】 発光層がブロック状になっていることを特徴とする請求項 1 ないし 18 のいずれか記載の有機電界発光素子。

【請求項 22】 複数の色を発光する領域からなるブロック状の発光層を設けることにより白色発光となることを特徴とする請求項 21 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 23】 発光層が気相成長法により形成されたものであることを特徴とする請求項 1 ないし 22 のい

10

20

30

40

50

れか記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ディスプレイ等の各種の表示装置として広範囲に利用される発光素子であって、特に低い駆動電圧、高輝度、安定性に優れた有機電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】電界発光素子は、自己発光のために液晶素子にくらべて明るく、鮮明な表示が可能であるため、旧来多くの研究者によって研究されてきた。

【0003】現在、実用レベルに達し商品化されている電界発光素子としては、無機材料のZnSを用いた素子がある。

【0004】しかし、この様な無機の電界発光素子は発光のための駆動電圧として200V程度必要であるため、広く使用されるには至っていない。

【0005】これに対して、有機材料を用いた電界発光素子である有機電界発光素子は、従来、実用的なレベルからはほど遠いものであったが、アプライド・フィジックス・レターズ、51巻、913頁、1987年（Applied Physics Letters, Vol. 51, P. 913, 1987）で開示されているように、コダック社のC. W. Tangらによって開発された積層構造素子により、その特性が飛躍的に進歩した。

【0006】彼らは、蒸着膜の構造が安定であって電子を輸送することのできる蛍光体と、正孔を輸送することのできる有機物を積層し、両方のキャリアーを蛍光体中に注入して発光させることに成功した。

【0007】これによって、有機電界発光素子の発光効率が向上し、10V以下の電圧で1000cd/m²以上の発光が得られるようになった。

【0008】さらに、ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス、65巻、3610頁、1989年（J. Appl. Phys., Vol. 65, P. 3610, 1989）で開示されているように、1989年には同じくコダック社のC. W. Tangらによりゲストホストシステムによる発光層が提案され、素子の発光効率の向上および多様な発光材料の使用が可能となった。現在、発光効率が高い有機電界発光素子の多くは、ゲストホストシステムによる発光層を用いている。

【0009】しかしながら、ゲストホストシステムで発光効率の向上した素子を得るためには、ゲスト材料である発光材料を1mol%程度の低濃度でホスト材料にドーピングする必要がある。有機電界発光素子では発光層の膜厚は数十nm程度であり、その形成方法は通常真空蒸着法を用いている。このため、このような低濃度にドーピングされた薄膜発光層を大面積の基板に均一に形成することは困難であり、ゲストホストシステムによる素子の実用

化において大きな問題となっている。

【0010】また、ゲスト材料として用いられる発光材料を通常の方法で発光層として用いても発光効率の良い有機電界発光素子を得るのは困難である。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、発光効率が高く、様々な色の発光が可能である有機電界発光素子を容易に提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明は、発光層に用いる有機物が濃度消光を起すものであり、かつ発光層の膜厚が4nm以下、あるいは島状に形成された有機電界発光素子である。または、発光層に用いる有機物の蛍光寿命が、電子と正孔の再結合領域に用いられる他の材料の蛍光寿命より短いものであり、かつ発光層の膜厚が4nm以下、あるいは島状に形成された有機電界発光素子である。または、発光層に用いる有機物の蛍光寿命が10ナノ秒以下であり、発光層の膜厚が4nm以下、あるいは島状に形成された有機電界発光素子である。

【0013】このような構成によれば、発光効率が高く、様々な色の発光が可能である有機電界発光素子が容易に提供される。

【0014】

【発明の実施の形態】請求項1記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記発光層が濃度消光を起す有機物を含むものであり、かつ前記発光層の膜厚が4nm以下であることを特徴とする有機電界発光素子である。濃度消光とは濃度を上げると光らなくなる現象であるが、このように濃度消光を起す有機物を発光層に用いても、発光層の膜厚を4nm以下にすることで高効率な電界発光が可能となる。ここで用いられる濃度消光を起す発光材料としては、レーザ色素等の各種の蛍光性有機化合物から選べるのであり、特に有用な発光材料としてはキナクリドン誘導体、クマリン誘導体、メロシアニン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、スチリル誘導体、フラボン誘導体、キノリン誘導体、アクリジン誘導体、縮合多環化合物などが挙げられる。具体的には、N,N'-ジメチルキナクリドン（以下DMQという）、N,N'-ジフェニルキナクリドン、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン6という）、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン（以下DCMという）、ルブレン、ジフェニルテトラセン、ペリレンなどが挙げられる。

【0015】請求項2記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に有機物を含有する発光層と、電子又は正孔を輸送する電荷輸送層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が前記電荷輸送層に含まれる材料の蛍光寿命より短く、かつ前記発

光層の膜厚が 4 nm 以下であることを特徴とする有機電界発光素子である。このような発光層を設けることにより、電荷輸送層で電子と正孔が再結合して生成する励起子のエネルギーを発光層の材料に効率良く移すことができ、発光層から高効率な電界発光を得ることが可能となる。ここでいう蛍光寿命とは蛍光強度が初期の $1/e$ になるまでの時間を示しており、汎用の蛍光寿命測定装置により測定されるものである。このような素子の具体例としては、例えば、発光層に用いる有機物として 4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン（以下 DCM という）を用い、電荷輸送層に用いられる材料としてトリス(8-キノリノール)アルミニウム（以下 Alq という）を用いた例を挙げられる。DCM の蛍光寿命は 2~3 ns 秒で、Alq の蛍光寿命は約 12 ns 秒である。なお、電子と正孔が再結合して励起子を生成する現象は発光層でも起こりうるのはいうまでもない。

【0016】請求項 3 記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に有機物を含有する発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が 10 ns 秒以下であり、かつ前記発光層の膜厚が 4 nm 以下であることを特徴とする有機電界発光素子である。このように発光層に用いる有機物の蛍光寿命を 10 ns 秒以下のものを用いることにより電子と正孔の再結合により生成した励起子のエネルギーを効率よく発光層に移すことができ、発光層の膜厚を 4 nm のとしても効率良い電界発光を得ることができる。蛍光寿命が 10 ns 秒以下の有機物としては、例えば DCM が挙げられる。DCM の蛍光寿命は 2~3 ns 秒である。

【0017】請求項 4 記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記発光層が濃度消光を起す有機物を含むものであり、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子である。このように、濃度消光を起す有機物を発光層に用いても、発光層を島状に形成することで高効率な電界発光が可能となる。ここで用いられる濃度消光を起す発光材料としては、レーザ色素等の各種の蛍光性有機化合物から選べられるものであり、特に有用な発光材料としてはキナクリドン誘導体、クマリン誘導体、メロシアン誘導体、オキサゾール誘導体、チアゾール誘導体、スチリル誘導体、フラボン誘導体、キノリン誘導体、アクリジン誘導体、縮合多環化合物などが挙げられる。具体的には、N,N'-ジメチルキナクリドン（DMQ）、N,N'-ジフェニルキナクリドン、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン（クマリン 6）、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン（DCM）、ルブレン、ジフェニルテトラセン、ペリレンなどが挙げられる。一般に薄膜形成する際に、極薄膜、例えば 1 nm 以下の薄膜を作成した場合

は、膜が島状に形成されている場合が多い。

【0018】請求項 5 記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に有機物を含有する発光層と、電子又は正孔を輸送する電荷輸送層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が前記電荷輸送層に含まれる材料の蛍光寿命より短く、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子である。このような発光層を設けることにより、電荷輸送層でのエネルギーを発光層の材料に効率良く移すことができ、発光層を島状に形成しても発光層から高効率な電界発光を得ることが可能となる。ここでいう蛍光寿命とは蛍光強度が初期の $1/e$ になるまでの時間を示しており、汎用の蛍光寿命測定装置により測定されるものである。一般に薄膜形成する際に、極薄膜、例えば 1 nm 以下の薄膜を作成した場合は、膜が島状に形成されている場合が多い。なお、電子と正孔が再結合して励起子を生成する現象は発光層でも起こりうるのはいうまでもない。

【0019】請求項 6 記載の発明は、一対の電極と、前記一対の電極の間に有機物を含有する発光層を少なくとも有する有機電界発光素子であって、前記有機物の蛍光寿命が 10 ns 秒以下であり、かつ前記発光層が島状に形成されたものであることを特徴とする有機電界発光素子である。このように発光層に用いる有機物の蛍光寿命を 10 ns 秒以下のものを用いることにより電子と正孔の再結合により生成した励起子のエネルギーを効率よく発光層に移すことができ、発光層を島状に形成しても効率良い電界発光を得ることができる。一般に薄膜形成する際に、極薄膜、例えば 1 nm 以下の薄膜を作成した場合は、膜が島状に形成されている場合が多い。

【0020】請求項 7 又は 8 記載の発明は、正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層と前記電子輸送層の間に設けてあることを特徴とする有機電界発光素子である。このように発光層を正孔輸送層と電子輸送層の間に設けることにより、発光層へ注入される正孔と電子のバランスがよくなり発光効率の向上がなされる。

【0021】請求項 9 又は 10 記載の発明は、正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記正孔輸送層の中に設けてあることを特徴とする有機電界発光素子である。このような構成をとることにより、正孔輸送層と電子輸送層の界面近傍に多く存在すると考えられている励起子のエネルギーを効率良く発光層に移すことができ、正孔輸送層の中に発光層を設けても高効率発光が可能となる。発光層を設ける位置は正孔輸送層と電子輸送層の界面に近い方がよい。

【0022】請求項 11 又は 12 記載の発明は、正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が前記電子輸送層の中に設けてあることを特徴とする有機電界発光素子である。このような構成をと

ることにより、正孔輸送層と電子輸送層の界面近傍に多く存在すると考えられている励起子のエネルギーを効率良く発光層に移すことができ、電子輸送層の中に発光層を設けても高効率発光が可能となる。発光層を設ける位置は正孔輸送層と電子輸送層の界面に近い方がよいが、電子輸送層の中に設ける場合は正孔輸送層の中に設ける場合と違って 20 nm 程度離しても発光層から発光が十分得られる。

【0023】請求項 13 又は 14 記載の発明は、正孔を輸送する正孔輸送層及び電子を輸送する電子輸送層を有し、発光層が、前記正孔輸送層と電子輸送層の間、前記正孔輸送層の中、又は前記電子輸送層の中のいずれか複数の部位に設けてあることを特徴とする有機電界発光素子である。このように複数の部位に設けることにより励起子から発光層へのエネルギー移動がさらに効率良く起こり発光効率の向上がなされる。

【0024】請求項 15 記載の発明は、発光層に接して正孔ブロック層を設けたことを特徴とする有機電界発光素子であり、発光層近傍に正孔と電子の再結合領域を限定することができ発光効率の向上が可能となる。ここで用いられる正孔ブロック層としては、従来から有機電界発光素子で用いられているもので良く、トリアゾール誘導体や 8-キノリノール誘導体の金属錯体などの有機化合物や、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物や酸化アルミなどの無機化合物の超薄膜が挙げられる。具体的には、3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-ターシャールブチルフェニル-1,2,4-トリアゾール、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、LiF、Li₂O、MgF、CaF、SiO、GeOなどが挙げられる。

【0025】請求項 16 記載の発明は、発光層に接して電子ブロック層を設けたことを特徴とする有機電界発光素子であり、発光層近傍に正孔と電子の再結合領域を限定することができ発光効率の向上が可能となる。ここで用いられる電子ブロック層としては、従来から有機電界発光素子で用いられているもので良く、芳香族アミン化合物などの有機化合物や、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物や酸化物、フッ化物などの無機化合物の超薄膜が挙げられる。具体的には、LiF、Li₂O、MgF、CaF、SiO、GeOなどが挙げられる。

【0026】請求項 17 記載の発明は、発光層に接して正孔輸送層に含まれる第 1 の材料と発光層に含まれる第 2 の材料の混合層を設けたことを特徴とする有機電界発光素子である。このように正孔輸送材料と発光材料の混合層を設けることにより発光材の界面の状態を安定化することができ、特に駆動時の発光安定性を向上させることが可能となる。

【0027】請求項 18 記載の発明は、発光層に接して電子輸送層に含まれる第 1 の材料と発光層に含まれる第

2 の材料の混合層を設けたことを特徴とする有機電界発光素子である。このように電子輸送材料と発光材料の混合層を設けることにより発光材の界面の状態を安定化することができ、特に駆動時の発光安定性を向上させることが可能となる。

【0028】請求項 19 記載の発明は、発光層が多層構造になっていることを特徴とした有機電界発光素子であり、発光領域の増大により発光効率の向上が可能となる。さらに発光層を、それぞれ異なる色を発光する複数の発光層からなる多層構造にすることが可能であり、これにより複数の発光色を混合して様々な発光色を実現することができる。

【0029】請求項 20 記載の発明は、それぞれ異なる色を発光する複数の発光層からなる多層構造を設けることにより白色発光となることを特徴とした有機電界発光素子であり、高効率の白色発光が可能となる。白色発光の形成方法としては、青色、緑色、赤色の三原色を発光させるほかにも、青緑色系発光とオレンジ色系発光の混合を用いるなどさまざまな方法が可能である。

【0030】請求項 21 記載の発明は、発光層がブロック状になっていることを特徴とした有機電界発光素子であり、発光領域の分割化により発光の安定性が向上する。さらに、発光層を複数の色を発光する複数のブロック領域を設けることができ、複数の発光色を混合することにより様々な発光色を実現することができる。

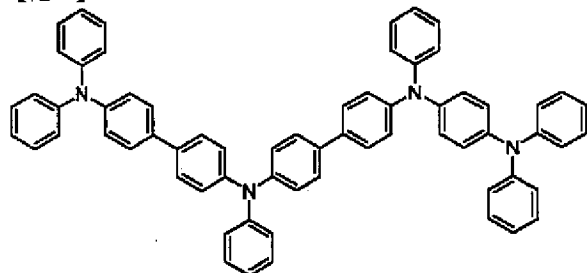
【0031】請求項 22 記載の発明は、複数の色を発光する領域からなるブロック状の発光層を設けることにより白色発光となることを特徴とした有機電界発光素子であり、高効率の白色発光が可能となる。白色発光の形成方法としては、青色、緑色、赤色の三原色を発光させるほかにも、青緑色系発光とオレンジ色系発光の混合するなどさまざまな方法が可能である。また、請求項 23 に記載のように、発光層を気相成長法により形成することにより、4 nm 以下の発光層の形成や島状の発光層の形成が容易にできる。気相成長法としては真空蒸着法が最適である。

【0032】以下に、本発明を具体的な実施の形態により説明する。

【0033】以下の実施の形態では、正孔輸送材として(化 1)で示す N,N'-ビス[4'-(N,N'-ジフェニルアミノ)-4-ビフェニル]-N,N'-ジフェニルベンジジン(以下 TPT という)を、電子輸送材として(化 2)で示すトリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下 Alq という)を用い、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極の順に積層した素子の構成を代表的に示すが、本発明はこの構成に限定されるものでもない。また、通常は基板上に陽極から陰極の順に積層するが、これとは逆に基板上に陰極から陽極の順に積層してもよい。

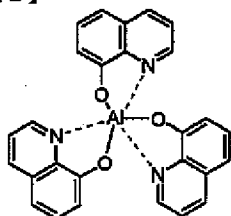
【0034】

【化1】



【0035】

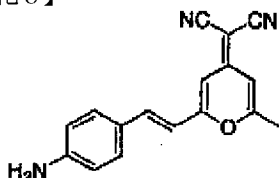
【化2】



【0036】（実施の形態1）本発明の第1の実施の形態における有機電界発光素子は、図1にその断面図を示すように、ガラス基板1上に透明電極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔を輸送する正孔輸送層3、発光現象が起こる発光層4、電子を輸送する電子輸送層5、陰極6の順に蒸着して作製した構成を有する。発光層としては（化3）に示すDCMを用いた。DCMは濃度消光を起こす有機物である。

【0037】

【化3】



30

*

発光層の膜厚 (nm)	電子輸送層の膜厚 (nm)	ピーク波長 (nm)	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
0.2	49.8	591	2.5	300
0.5	49.5	593	2.2	290
1	49	593	2.0	290
2	48	596	1.9	230
4	46	598	1.8	150
10	40	614	0.2	4
20	30	639	0.1	3
50	0	648	0.05	1以下

【0043】（表1）より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が優れていることが確認された。

【0044】なお、DCMの蛍光寿命は2～3 ns秒で、Alqの蛍光寿命は約12 ns秒である。また、膜厚が1 nm以下の場合、薄膜は島状に形成されている可能性が高く、その場合も良好な結果が得られているのが（表

＊【0038】まず、十分に洗浄したITO電極付きのガラス基板、TPT、DCM、Alq、アルミニウム及びリチウムを蒸着装置にセットした。

【0039】ついで、 2×10^{-6} torrまで排気した後、0.1 nm/秒の速度でセットしたTPTを蒸着し正孔輸送層を50 nm形成した。ついで、セットした発光材のDCMを0.01 nm/秒の速度で蒸着し、膜厚0.2 nmの発光層を形成した。次に、電子輸送材のAlqを0.1 nm/秒で蒸着し、膜厚50 nmの電子輸送層を積層した。その後、アルミニウムとリチウムをそれぞれ別の蒸着源より蒸着しアルミニウムとリチウムの共蒸着層を150 nm形成して陰極とした。なお、これらの蒸着はいずれも真空を破らずに連続して行い、膜厚は水晶振動子によってモニターした。

【0040】そして、素子作製後、直ちに乾燥窒素中で電極の取り出しを行い、引続き特性測定を行った。ここで、得られた素子の発光効率は、発光輝度100 cd/m²の場合の値で定義した。また、駆動寿命は初期輝度を1000 cd/m²として一定電流で駆動したときに、輝度が初期の半分の500 cd/m²になる間での時間で定義した。

【0041】同様の測定を発光層の膜厚を変化させて行った。その結果を、以下の（表1）に示す。

【0042】

【表1】

1）よりわかる。

【0045】（実施の形態2）本発明の第2の実施の形態における有機電界発光素子は、図2及び図3にその断面図を示すように発光層を電子輸送層の中または正孔輸送層の中に設けた以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。図2及び図3において、1はガラス基板、2は透明電極、3は正孔

を輸送する正孔輸送層、4は発光現象が起こる発光層、5は電子を輸送する電子輸送層、6は陰極である。発光層の位置の詳細は(表2)に示した通りであるが、表中のX及びYとは図2及び図3に示したように、発光層が電子輸送層と正孔輸送層の界面からどれだけ離れている*

*かを示している。

【0046】その結果を、以下の(表2)に示す。

【0047】

【表2】

発光層の位置 (nm)	ピーク波長 (nm)	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
X=0	591	2.5	300
X=0.5	595	1.8	280
X=2	598	1.6	280
X=5	602	1.6	270
X=10	606	1.5	250
X=20	610	1.3	250
X=40	530	0.7	100
Y=0.5	580	2.4	310
Y=2	540	2.1	300
Y=5	520	2.0	300
X=0, 5	595	2.6	350
X=0, 5, 10	605	2.8	400

【0048】(表2)より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が優れていることが確認された。発光層を設ける位置としては正孔輸送層と電子輸送層の間だけでなく、正孔輸送層の中や電子輸送層の中に設けることも有効であることが確認された。しかし、発光層を正孔輸送層の中に設けた場合には、正孔輸送層と電子輸送層の界面より2nm離れてしまうと電子輸送層であるAlqからの緑色の発光となりDCMからの発光は得られなかった。一方、電子輸送層の中に設ける場合では、界面から20nm離れたところに設けてもDCMからのオレンジ色の発光が得られることが確認された。さらに、発光層を複数の部位に設けることにより、発光効率及び駆動寿命が向上したことが確認された。

※【0049】(実施の形態3)本発明の第3の実施の形態における有機電界発光素子は、図4にその断面図を示すように発光層に接して正孔ブロック層または電子ブロック層を設けた以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。図4において、1はガラス基板、2は透明電極、3は正孔を輸送する正孔輸送層、4は発光現象が起こる発光層、5は電子を輸送する電子輸送層、6は陰極、7は電子ブロック層、8は正孔ブロック層である。正孔または電子ブロック層としてはLiFおよびトリアゾール誘導体(TAZ)を用い(表3)に示した構成の素子を作製した。

【0050】その結果を、以下の(表3)に示す。

【0051】

※【表3】

正孔ブロック層 (nm)	電子ブロック層 (nm)	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
—	—	2.5	300
LiF:0.5nm	—	2.9	380
—	LiF:0.5nm	2.7	350
LiF:0.5nm	LiF:0.5nm	3.2	400
TAZ:5nm	—	2.7	370
TAZ:5nm	TAZ:5nm	2.9	390

【0052】(表3)より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が優れていることが確認された。

【0053】(実施の形態4)本発明の第4の実施の形態における有機電界発光素子は、図5にその断面図を示すように発光層に接して正孔輸送層に含まれる正孔輸送材と発光層に含まれる発光材の混合層、又は電子輸送層に含まれる電子輸送材と発光材の混合層を設けた以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。図5において、1はガラス基板、2は透明電極、3は正孔を輸送する正孔輸送層、4は発

光現象が起こる発光層、5は電子を輸送する電子輸送層、6は陰極、9は正孔輸送材と発光材の混合層、10は電子輸送材と発光材の混合層である。なお、正孔輸送材(TPT)と発光材(DCM)の混合層は正孔輸送層と発光層の間に、電子輸送材(Alq)と発光材(DCM)の混合層は発光層と電子輸送層の間に設けた。また混合層はそれぞれの材料を1:1になるように共蒸着法により成膜し、その膜厚は10nmとした。

【0054】その結果を、以下の(表4)に示す。

【0055】

【表4】

正孔輸送材と発光材 の混合層	電子輸送材と発光材 の混合層	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
—	—	2.5	300
○	—	2.6	400
—	○	2.5	380
○	○	2.7	450

【0056】（表4）より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が優れていることが確認された。

【0057】（実施の形態5）本発明の第5の実施の形態における有機電界発光素子は、発光層にDCMに替えて（表5）に示す材料を用いて発光層の膜厚を0.2nm*

*mにした以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製し、その特性を評価した。

【0058】その結果を、以下の（表5）に示す。

【0059】

【表5】

発光層	ピーク波長 (nm)	発光効率 (lm/W)	駆動寿命 (時間)
DCM	591	2.5	300
DMQ	530	5.6	700
クマリン6	510	6.5	650
ルブレン	560	4.7	800

【0060】（表5）より、本実施の形態の有機電界発光素子は、発光効率、駆動寿命が優れていることが確認された。

【0061】（実施の形態6）本発明の第6の実施の形態における有機電界発光素子は、図6及び図7にその断面図を示すように発光層をその成分を異なる三層の多層構造とした以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製した。図6及び図7において、1はガラス基板、2は透明電極、3は正孔を輸送する正孔輸送層、4aは発光現象が起こる第1の発光層、4bは発光現象が起こる第2の発光層、4cは発光現象が起こる第3の発光層、5は電子を輸送する電子輸送層、6は陰極である。各発光層（4a、4b、4c）は図6のように間隔を設けて形成してもよく、また図7のように積層されていてもよい。このように作製した素子の特性を評価したところ、良好な結果が得られた。

【0062】また、例えば4aを赤色系、4bを緑色系、4cを青色系の発光層とすることで白色発光を実現することができる。さらに、フィルタなどにより白色発光を再度いくつかの色に分けて用いることも可能である。

【0063】（実施の形態7）本発明の第7の実施の形態における有機電界発光素子は、図8にその断面図を示すように発光層をそれぞれ成分の異なる3つのブロック状とした以外は、実施の形態1と同様に有機電界発光素子を作製した。図8において、1はガラス基板、2は透明電極、3は正孔を輸送する正孔輸送層、4dは発光現象が起こる第1の発光層、4eは発光現象が起こる第2の発光層、4fは発光現象が起こる第3の発光層、5は電子を輸送する電子輸送層、6は陰極である。ブロック状発光層は、リソグラフィ技術及び薄膜加工技術等を用いて作製した。ブロック状発光層の形状はストライプ状

や格子状等のさまざまな形態をとることができる。図9

(a)に、ストライプ状、図9(b)に格子状の場合の、発光層の平面構成図の例を示す。図9(a)、

(b)において、4dは発光現象が起こる第1の発光層、4eは発光現象が起こる第2の発光層、4fは発光現象が起こる第3の発光層である。このように作製した素子の特性を評価したところ、良好な結果が得られた。

【0064】なお、例えば図8や図9で示した発光層において4dを赤色系、4eを緑色系、4fを青色系の発光層とすることで白色発光を実現することができる。さらに、フィルタなどにより白色発光を再度いくつかの色に分けて用いることもできる。

【0065】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、発光効率がよく駆動寿命時の輝度の低下が小さい有機電界発光素子が得られるという有利な効果が得られる。また、様々な色の発光が可能である有機電界発光素子を容易に得られることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図2】本発明の第2の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図3】本発明の第2の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図4】本発明の第3の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図5】本発明の第4の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図6】本発明の第6の実施の形態における有機電界発光素子の構成を示す断面図

【図7】本発明の第6の実施の形態における有機電界発

光素子の構成を示す断面図

【図 8】 本発明の第 7 の実施の形態における有機電界発
光素子の構成を示す断面図

【図 9】 本発明の第 7 の実施の形態におけるブロック状
発光層の平面構成図

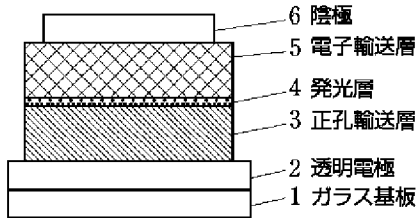
【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層

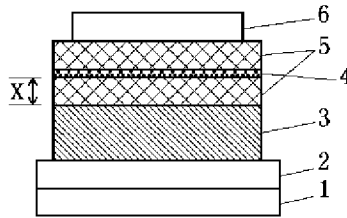
- * 4、4 a、4 b、4 c、4 d、4 e、4 f 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 陰極
- 7 電子ブロック層
- 8 正孔ブロック層
- 9 正孔輸送材と発光材の混合層
- 10 電子輸送材と発光材の混合層

*

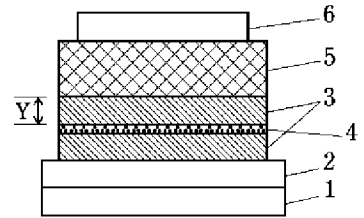
【図 1】



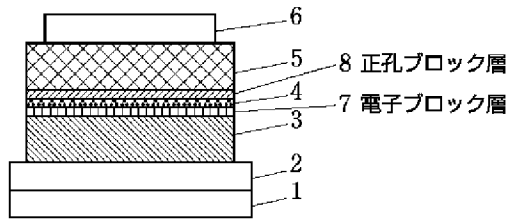
【図 2】



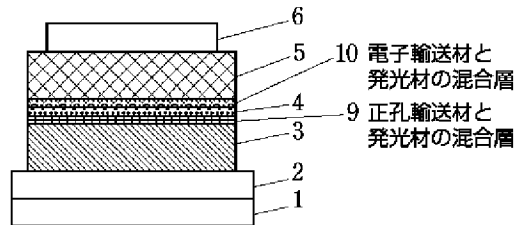
【図 3】



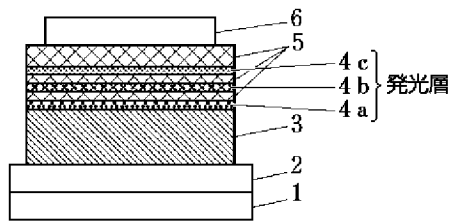
【図 4】



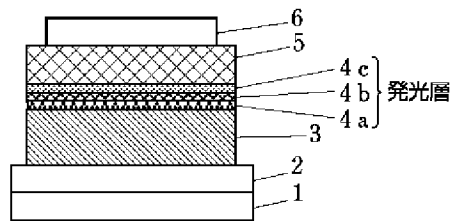
【図 5】



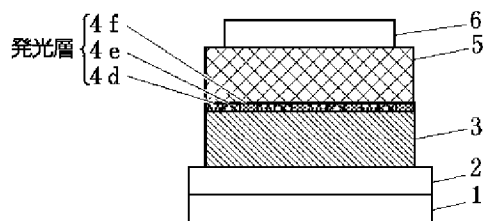
【図 6】



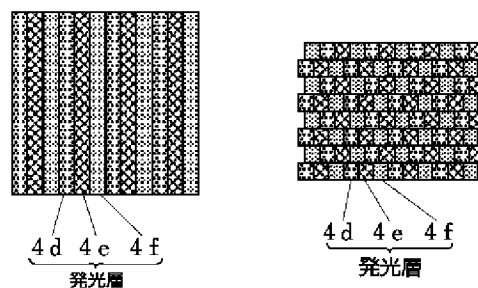
【図 7】



【図 8】



【図 9】



フロントページの続き

(72)発明者 工藤 祐治

神奈川県川崎市多摩区東三田 3 丁目10番 1
号 松下技研株式会社内

(72)発明者 堀 義和

神奈川県川崎市多摩区東三田 3 丁目10番 1
号 松下技研株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 CA01
CB01 DA01 DB03 EB00